

特許協力条約

PCT

国際予備審査報告

(法第12条、法施行規則第56条)
[PCT36条及びPCT規則70]

RECD 24 JUN 2004

WIPO

PCT

| | | |
|---|---|-----------------------------|
| 出願人又は代理人 の書類記号 RDC52M/PCT | 今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知（様式PCT/IPEA/416）を参照すること。 | |
| 国際出願番号 PCT/JP03/07929 | 国際出願日 (日.月.年) 23. 06. 2003 | 優先日 (日.月.年) 05. 07. 2002 |
| 国際特許分類 (IPC) Int. Cl' C23C 24/00, G01N 21/65 | | |
| 出願人（氏名又は名称） 独立行政法人科学技術振興機構 | | |

1. 国際予備審査機関が作成したこの国際予備審査報告を法施行規則第57条（PCT36条）の規定に従い送付する。
2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 3 ページからなる。
- この国際予備審査報告には、附属書類、つまり補正されて、この報告の基礎とされた及び／又はこの国際予備審査機関に対して訂正を含む明細書、請求の範囲及び／又は図面も添付されている。
(PCT規則70.16及びPCT実施細則第607号参照)
- この附属書類は、全部で 9 ページである。
3. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。
- I 国際予備審査報告の基礎
 - II 優先権
 - III 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成
 - IV 発明の單一性の欠如
 - V PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明
 - VI ある種の引用文献
 - VII 国際出願の不備
 - VIII 国際出願に対する意見

| | |
|--|---|
| 国際予備審査の請求書を受理した日 10.11.2003 | 国際予備審査報告を作成した日 03.06.2004 |
| 名称及びあて先 日本国特許庁 (IPEA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号 | 特許庁審査官（権限のある職員） 鈴木 正紀 電話番号 03-3581-1101 内線 3475 |

I. 国際予備審査報告の基礎

1. この国際予備審査報告は下記の出願書類に基づいて作成された。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に応答するために提出された差し替え用紙は、この報告書において「出願時」とし、本報告書には添付しない。PCT規則70.16, 70.17)

出願時の国際出願書類

明細書 第 1 - 2, 8, 11, 13 - 16 ページ、出願時に提出されたもの
 明細書 第 _____ ページ、国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
 明細書 第 3 - 7, 9, 10, 12 ページ、13.05.2004 付の書簡と共に提出されたもの

請求の範囲 第 2 - 16 項、出願時に提出されたもの
 請求の範囲 第 _____ 項、PCT19条の規定に基づき補正されたもの
 請求の範囲 第 _____ 項、国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
 請求の範囲 第 1 項、13.05.2004 付の書簡と共に提出されたもの

図面 第 1 - 4 図、出願時に提出されたもの
 図面 第 _____ 國、国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
 図面 第 _____ 付の書簡と共に提出されたもの

明細書の配列表の部分 第 _____ ページ、出願時に提出されたもの
 明細書の配列表の部分 第 _____ ページ、国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
 明細書の配列表の部分 第 _____ ページ、付の書簡と共に提出されたもの

2. 上記の出願書類の言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願の言語である。

上記の書類は、下記の言語である _____ 語である。

- 国際調査のために提出されたPCT規則23.1(b)にいう翻訳文の言語
 PCT規則48.3(b)にいう国際公開の言語
 国際予備審査のために提出されたPCT規則55.2または55.3にいう翻訳文の言語

3. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際予備審査報告を行った。

- この国際出願に含まれる書面による配列表
 この国際出願と共に提出された磁気ディスクによる配列表
 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された書面による配列表
 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された磁気ディスクによる配列表
 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった
 書面による配列表に記載した配列と磁気ディスクによる配列表に記録した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

4. 補正により、下記の書類が削除された。

明細書 第 _____ ページ
 請求の範囲 第 _____ 項
 図面 図面の第 _____ ページ/図

5. この国際予備審査報告は、補充欄に示したように、補正が出願時における開示の範囲を超えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c) この補正を含む差し替え用紙は上記1.における判断の際に考慮しなければならず、本報告に添付する。)

V. 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条（PCT35条(2)）に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

1. 見解

| | | | |
|-----------------|-------|------|---|
| 新規性 (N) | 請求の範囲 | 1—16 | 有 |
| | 請求の範囲 | | 無 |
| 進歩性 (I S) | 請求の範囲 | 1—16 | 有 |
| | 請求の範囲 | | 無 |
| 産業上の利用可能性 (I A) | 請求の範囲 | 1—16 | 有 |
| | 請求の範囲 | | 無 |

2. 文献及び説明 (PCT規則70.7)

国際調査報告で引用した文献には、高エネルギー線を照射して金属微粒子を付着させる方法として、高エネルギーの電磁波および／または高エネルギー密度の電磁波の照射により脱離する分散安定剤で安定化した金属微粒子を、より低いエネルギーの電磁波および／またはより低いエネルギー密度の電磁波の照射により前記金属微粒子表面から脱離する分散剤および／または金属微粒子に対する結合性を有しない化合物を含有する溶液中に加え、前記分散安定剤の一部を前記分散剤および／または化合物で置換した金属微粒子のコロイド溶液を調整し、前記調整したコロイド溶液に前記高エネルギーの電磁波および／または高エネルギー密度の電磁波を照射することにより、金属微粒子表面の前記分散安定剤の一部を脱離させ、かつ前記分散安定剤で安定化した金属微粒子の粒径を元の粒径の2～100倍程度の凝集を起こさせる程に活性化され光感度を上げた金属微粒子分散液を生成させる前記高エネルギーの電磁波および／または高エネルギー密度の電磁波を照射する工程、前記活性化して光感度を上げた金属微粒子分散液に前記より低いエネルギーの電磁波および／またはより低いエネルギー密度の電磁波を照射して、基体表面上に前記低いエネルギーの電磁波および／またはより低いエネルギー密度の電磁波の照射に対応する所望の微細構造に前記金属微粒子を固定する工程を含むものは記載されておらず、当業者にとって自明な事項でもない。

液の光反応性について検討し、10%をSH(C_6H_{12})SHで置換した場合、光反応性の高い金属微粒子分散液が得られることが分かったことを報告している〔第38回 化学関連支部合同九州大会 講演予稿集；演題1.46 パルスレーザー照射による表面修飾金ナノ粒子の固定化(1)：ジチオール修飾の効果(2001年7月19日、)文献1、2001年光化学討論会、日本分析化学会第50年会、p129、第20回固体・表面光化学討論会、講演発表、p133。〕。

また、前記微粒子金属による共鳴ラマンセンサーとしての機能性の向上を利用する測定技術への応用などを示唆してきた。また、前記金属は、適当な化学構造の末端のチオール基、アミノ基、シリル基、またはシアノ基と非共有結合的または共有結合的に結合するので、前記基を持つ化合物を自己組織化する機能を持つことが知られている。

前記自己組織化する化合物の特徴は、前記金属に結合する、チオール基、アミノ基、シリル基、またはシアノ基を末端に有し、かつ分子が単分子膜に近い構造で配列する分子間力が働く化学構造、例えば長鎖のアルキル構造など親油性の化学構造を有している。更に前記化学構造の他に適当な化学構造を認識する官能基、例えば抗原－抗体の関係の基を持たせることにより、前記関係を利用したセンサーとして利用できる。また前記配列をエネルギー集約可能な構造にすることにより、前記化合物が発する信号の増強機能を発現する前記金属微粒子群の微細構造系を構築できる。

そのためには、前記機能を有効に利用できるように前記金属微粒子の微細構造を適当な基体表面に固定できる手段の確立が重要である。

前記本発明者らが提案した金属微粒子のコロイド溶液から電磁波の照射により基体表面上に前記金属微粒子からの金属微粒子を凝集、固定する方法では、比較的高エネルギーの電磁波の照射が必要であり、そのような高エネルギーの照射は、基体を損傷したり、フォトマスクなど介して照射する場合には、前記フォトマスクを損傷するなどの問題が存在する。従って、前記問題を排除した、前記のような広い産業分野での利用が期待できる基体表面への金属微粒子の固定方法の技術の確立が期待される。

本発明の課題は、前記基体の損傷、フォトマスクの損傷といった不都合を取り除いた新規な基体表面への金属微粒子の固定方法、特にフォトマスクなどを利用した比較的簡易な方法により基体表面へ金属微粒子を微細構造に固定する方法を提供することである。

そこで、前記課題の解決方法を検討する中で、前記本発明者らが研究発表した金属微粒子のコロイド分散液を調整する際に用いられた分散安定剤であるn-デシルチオールの10%を比較的分散安定性の小さい1,6-ヘキサンジチオールのような、比較的小さなエネルギーで金属微粒子の凝集、固定を誘起できる化合物で置換することにより、光反応性が改善されたことを考慮して、比較的小さなエネルギーで金属微粒子の凝集、固定を誘起できる金属微粒子のコロイド分散液系を構築できないか鋭意検討した。

その中で、分散安定剤により被覆処理した金属微粒子を1,6-ヘキサンジチオールのような、比較的小さなエネルギーで金属微粒子の凝集、固定を誘起できる化合物を添加した有機溶媒に分散して調製した金属微粒子のコロイド分散液系に比較的高強度および/または高密度の電磁波を照射処理することにより、比較的小さなエ

エネルギーで金属微粒子の凝集、固定ができる発見し、前記課題を解決した基体表面へ金属微粒子を微細構造に固定する方法を確立することができた。

発明の開示

本発明は、(1)高エネルギーの電磁波および／または高エネルギー密度の電磁波の照射により脱離する分散安定剤で安定化した金属微粒子を、より低いエネルギーの電磁波および／またはより低いエネルギー密度の電磁波の照射により前記金属微粒子表面から脱離する分散剤および／または金属微粒子に対する結合性を有しない化合物を含有する溶液に加え、前記分散安定剤の一部を前記分散剤および／または化合物で置換した金属微粒子のコロイド溶液を調製を調製し、前記調製したコロイド溶液に前記高エネルギーの電磁波および／または高エネルギー密度の電磁波を照射することにより金属微粒子表面の前記分散安定剤の一部を脱離させ、かつ前記分散安定剤で安定化した金属微粒子の粒径を元の粒径の2～100倍程度の凝集を起こさせる程に活性化され光感度を上げた金属微粒子分散液を生成させる工程、前記活性化して光感度を上げた金属微粒子分散液に前記より低いエネルギーの電磁波および／またはより低いエネルギー密度の電磁波を照射して、基体表面に前記より低いエネルギーの電磁波および／またはより低いエネルギー密度の電磁波の照射に対応する所望の微細構造に前記金属微粒子を固定する方法である。

好ましくは、(2)前記金属微粒子の分散安定剤が金属微粒子と親和性の高い置換基としてチオール基、アミノ基、シリル基、また

はシアノ基を有する化合物、例えば、炭素数10以上の直鎖のアルキル基と結合している化合物である前記(1)の基体表面に所望の微細構造に前記金属微粒子を固定する方法であり、より好ましくは、(3)分散安定剤が金属化合物を化学還元して金属コロイド溶液を製造する際に用いられるものである前記(2)の基体表面に所望の微細構造に前記金属微粒子を固定する方法である。

また、好ましくは、(4)金属微粒子の分散安定剤より低いエネルギーの電磁波の照射により前記金属微粒子表面から脱離する分散剤および／または金属微粒子に対する結合性を有しない化合物が溶媒親和性部分の小さいおよび／または前記電磁波を吸収して脱離を誘起する化合物である前記(1)、(2)または(3)の基体表面に所望の微細構造に前記金属微粒子を固定する方法である。一層好ましくは、(5)分散安定剤で安定化した金属微粒子の粒径が1nm～100nmである前記(1)、(2)、(3)または(4)の基体表面に所望の微細構造に前記金属微粒子を固定する方法であり、より一層好ましくは、(6)分散安定剤で安定化した金属微粒子の粒径が2nm～30nmである前記(5)の基体表面に所望の微細構造に前記金属微粒子を固定する方法である。

好ましくは、(7)分散溶媒が脂環式炭化水素、直鎖脂肪族炭化水素および芳香族炭化水素からなる群から選択される少なくとも一種からなる有機溶媒である前記(1)、(2)、(3)、(4)、(5)または(6)の基体表面に所望の微細構造に前記金属微粒子を固定する方法である。

図面の簡単な説明

第1図は、本発明の2段階照射による金属ナノ粒子固定化の原理を説明するものであり、(a)は、高強度光源HLSから高強度パルス光（前記レーザーの2倍波（532nm）、10Hz、33mJ／パルス）の照射による溶液中粒子の活性化工程（AS）、および(b)弱強度光源LLSを用いてマスクMSを介してパターン化した光（前記レーザーの7mJ／パルス）を照射して固定化(FS)する工程により、(c)マイクロアレイ化した金属ナノ粒子固定パターン(MI)が形成される。

第2図は、DTAu（△、コロイド溶液1）とHD Au（○、コロイド溶液2）の固定量の違いを示す。同じ照射エネルギーであれば、DTAu（○）の方が多くの金が固定されたことが分かった。そのことは、コロイド溶液2のジチオール置換した金ナノ粒子の低強度レーザー照射時間（分）と金ナノ粒子固定量の関係から明らかである。

第3図は、固定された金ナノ粒子のSEM像（33mJ／パルス）によって固定化された金ナノ粒子のパターンを観察した顕微鏡写真である。

第4図は、本発明の技術の2段照射（33mJ／パルス、7mJ／パルス）によって固定化された金ナノ粒子のパターンの特性を示す。

発明を実施するための最良の形態

本発明をより詳細に説明する。

A. 金属微粒子の調製；

本発明の金属微粒子を固定する方法で使用する金属微粒子の溶液

ンなどの有機溶媒、特に低極性溶媒中に安定に分散可能である。

上記方法で調製された金微粒子の場合には、分散安定剤であるドデカンチオールと少量の低いエネルギーの電磁波の照射により前記金属微粒子表面から脱離する前記分散安定剤程の分散性および／または金属微粒子に対する結合性を有しない化合物を同時に含有する分散液に分散し、前記調整後の微粒子表面に吸着しているドデカンチオールの一部を前記化合物で置換できるようにする。前記置換する化合物が 1, 6-ヘキサンジチオールやシクロヘキサンチオールの場合には、ドデカンチオールの 5 % 程度の置換では分散安定性はほとんど損なわれない。他の前記化合物としては、金属ナノ粒子の光反応性を向上させる各種色素のように自身が光を吸収する化合物、特に色素自身の光反応性によって粒子表面から効率よく脱離する色素を置換しておくことが有効である。しかし、上記のジチオール化合物やシクロヘキサンチオールのように、照射した光（電磁波）を吸収しない化合物でも、金属微粒子の溶液中の分散安定性を著しく低下させる、例えば約 10 % の置換によって、低いエネルギーの電磁波および／または低いエネルギー密度の電磁波による固定化の効率を大幅に向上させることもできる。

B. 活性化；

前記金属微粒子の分散系に比較的高強度エネルギーの電磁波を照射することにより金属微粒子表面の分散安定剤の一部を脱離させ、分散系中の金属微粒子の凝集性を向上させる。例えば、Nd-YAG レーザーの 2 倍波を照射する場合は 20 mJ / パルス～60 mJ / パルスの照射光強度で 10 秒～3 分程度の照射を行うことが好ましい。過剰の照射光強度と照射時間は溶液の凝集・沈殿を引き

10

起こし、低すぎる照射光強度では粒子の活性化を行えない。また、活性化のための光（電磁波）照射は固定化を行う際に光を照射する方向とは別の方向から行なうことが好ましい。基材近傍の粒子のみを活性化することで溶液中の粒子の凝集・沈殿を抑制することにより基材への固定化効率を格段に向上させることができる。

C. 粒径制御；

高強度の電磁波を照射された粒子は保護剤の脱離によって凝集し、さらに吸収した電磁波のエネルギーによって融解し粒子サイズの成長が起こる。照射する電磁波の波長やエネルギー、および微粒子表面の前記分散安定剤と前記化合物の種類と置換分率によって固定される粒子の粒径を制御することができる。

D. 固定化；

前記比較的高強度の光照射により活性化された金属微粒子は比較的低強度の電磁波照射によって容易に凝集、固定するに至る。例えば、Nd-YAGレーザーの2倍波(532nm)ならば6mJ/パルス以下の照射でも粒子を基材表面に固定することができるが、比較的高強度の光照射による活性化のプロセスを行わない場合には固定化は全く進行しない。固定用の光としては、比較的低強度のパルス光源に限らず、CWレーザーや紫外光が利用可能である。

E. パターン化；

固定用の光をクロム蒸着マスクなどを通して照射することにより、粒子が固定され、パターン化できる。コヒーレントなCWレーザーを用いれば粒子固定のパターン化に回折パターンジェネレーターを利用できるので、より簡便な固定部分のパターン化が可能である。粒子活性化に用いる高強度のパルスレーザーをそのまま固

1 2

イド溶液 1) 、レーザー照射実験に用いた。

工程 2 ; 前記工程 1 で調製した D T A u 粒子を、 D T O . 9 m M へキサンジチオール (H D) 0 . 1 m M 含むシクロヘキサン溶液に分散し、前記 D T A u 粒子表面の D T の一部を H D に置換した金ナノ粒子 (H D A u 、 $27 \pm 0.5 \text{ nm}$) を調製した。チオール溶液中の H D A u は洗浄後、シクロヘキサンに分散し (0 . 32 m g / m L) レーザー照射実験に用いた (コロイド溶液 2) 。

2 種類のコロイド溶液 (1, 2) の吸収スペクトルを測定し、シクロヘキサンを徐々に加えることにより 532 n m での吸収ピークの吸光度が 0 . 5 になるように調製した。

金属微粒子固定基板の調製 ;

カバーガラス (Matsunami, 18 × 18 m m , 0 . 12 - 0 . 17 m m) を沸騰したアンモニア水 (28 %) / 過酸化水素水 (30 %) (1 : 1) 混合溶液に数分間浸漬し、表面を親水処理した。

金属微粒子の固定 ;

前記基板をガラスセル (20 × 10 × 5 m m) 中の D T A u (コロイド溶液 1) または H D A u 溶液 (コロイド溶液 2) に浸漬し、 N d - Y A G レーザー (Continuum 社製、 Surelite I) の 2 倍波 (532 n m , 10 H z , 33 m J / パルス (pulse) を照射した [第 1 図 ; (a) は、高強度光源 H L S からの高強度のパルス光 (H L S) 照射 (この場合は同じレーザーを用い、強度を変えて使用している。) による溶液中粒子の活性化工程 (A S) 、 (b) は弱強度光源 L L S からの光をマスク (M S) を介してパターン化した弱強度のパルス光により固定化する工程 (F S) 、前記各工程により (c) マイクロアレイ化した金属ナノ粒子固定パターン (M I)] 。基板上に固定され

請求の範囲

1. (補正後) 高エネルギーの電磁波および／または高エネルギー密度の電磁波の照射により脱離する分散安定剤で安定化した金属微粒子を、より低いエネルギーの電磁波および／またはより低いエネルギー密度の電磁波の照射により前記金属微粒子表面から脱離する分散剤および／または金属微粒子に対する結合性を有しない化合物を含有する溶液中に加え、前記分散安定剤の一部を前記分散剤および／または化合物で置換した金属微粒子のコロイド溶液を調製し、前記調製したコロイド溶液に前記高エネルギーの電磁波および／または高エネルギー密度の電磁波を照射することにより、金属微粒子表面の前記分散安定剤の一部を脱離させ、かつ前記分散安定剤で安定化した金属微粒子の粒径を元の粒径の2～100倍程度の凝集を起こさせる程に活性化され光感度を上げた金属微粒子分散液を生成させる前記高エネルギーの電磁波および／または高エネルギー密度の電磁波を照射する工程、前記活性化して光感度を上げた金属微粒子分散液に前記より低いエネルギーの電磁波および／またはより低いエネルギー密度の電磁波を照射して、基体表面に前記低いエネルギーの電磁波および／またはより低いエネルギー密度の電磁波の照射に対応する所望の微細構造に前記金属微粒子を固定する方法。
2. 金属微粒子の分散安定剤より低いエネルギーの電磁波の照射により前記金属微粒子表面から脱離する分散剤および／または金属微粒子に対する結合性を有しない化合物が溶媒親和性部分が小さいおよび／または前記電磁波を吸収して脱離を誘起する化合物である請求の範囲1に記載の基体表面に所望の微細

EXTENT COOPERATION TREATY

PCT**INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT**

(PCT Article 36 and Rule 70)

| | | |
|--|--|---|
| Applicant's or agent's file reference RDC52M/PCT | FOR FURTHER ACTION See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416) | |
| International application No. PCT/JP2003/007929 | International filing date (day/month/year) 23 June 2003 (23.06.2003) | Priority date (day/month/year) 05 July 2002 (05.07.2002) |
| International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C23C 24/00, G01N 21/65 | | |
| Applicant JAPAN SCIENCE AND TECHNOLOGY AGENCY | | |

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.

2. This REPORT consists of a total of 3 sheets, including this cover sheet.

This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).

These annexes consist of a total of 9 sheets.

3. This report contains indications relating to the following items:

- I Basis of the report
- II Priority
- III Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
- IV Lack of unity of invention
- V Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
- VI Certain documents cited
- VII Certain defects in the international application
- VIII Certain observations on the international application

| | |
|---|--|
| Date of submission of the demand 10 November 2003 (10.11.2003) | Date of completion of this report 03 June 2004 (03.06.2004) |
| Name and mailing address of the IPEA/JP | Authorized officer |
| Facsimile No. | Telephone No. |

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP2003/007929

I. Basis of the report

1. With regard to the elements of the international application:*

- the international application as originally filed
 the description:

pages 1-2,8,11,13-16, as originally filed
 pages _____, filed with the demand
 pages 3-7,9,10,12, filed with the letter of 13 May 2004 (13.05.2004)

- the claims:

pages 2-16, as originally filed
 pages _____, as amended (together with any statement under Article 19
 pages _____, filed with the demand
 pages 1, filed with the letter of 13 May 2004 (13.05.2004)

- the drawings:

pages 1-4, as originally filed
 pages _____, filed with the demand
 pages _____, filed with the letter of _____

- the sequence listing part of the description:

pages _____, as originally filed
 pages _____, filed with the demand
 pages _____, filed with the letter of _____

2. With regard to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.
 These elements were available or furnished to this Authority in the following language _____ which is:

- the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
 the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
 the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

3. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

- contained in the international application in written form.
 filed together with the international application in computer readable form.
 furnished subsequently to this Authority in written form.
 furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
 The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
 The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

4. The amendments have resulted in the cancellation of:

- the description, pages _____
 the claims, Nos. _____
 the drawings, sheets/fig _____

5. This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**

* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

** Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International Application No.

PCT/JP03/07929

V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability citations and explanations supporting such statement**1. Statement**

| | | | |
|-------------------------------|--------|------|-----|
| Novelty (N) | Claims | 1-16 | YES |
| | Claims | | NO |
| Inventive step (IS) | Claims | 1-16 | YES |
| | Claims | | NO |
| Industrial applicability (IA) | Claims | 1-16 | YES |
| | Claims | | NO |

2. Citations and explanations

The documents cited in the ISR do not describe a method of attaching metal fine particles by irradiation with a high energy beam that includes a step of replacing a part of metal fine particles stabilized by a dispersion stabilizer desorbed when irradiated with an electromagnetic wave of high energy and/or high energy density with a dispersant desorbed from the surfaces of the metal fine particles when irradiated with an electromagnetic wave of a lower energy and/or a lower energy density and/or a compound having no bindability to the metal fine particles so as to prepare a colloid solution of the metal fine particles, desorbing part of the aforesaid dispersion stabilizer on the surface of the metal fine particles by irradiating the aforesaid prepared colloid solution with an electromagnetic wave of high energy and/or high energy density, irradiating the metal fine particle dispersion solution having activated photosensitivity to the extent that causes the particle size of metal fine particles stabilized by the aforesaid dispersion stabilizer to agglomerate to about 2~100 times the original particle diameter with an electromagnetic wave of high energy and/or high energy density, irradiating the metal fine particles dispersion solution having the aforesaid activated and increased photosensitivity with an electromagnetic wave of a lower energy and/or a lower energy density, and fixing the aforesaid metal fine particles to a desired fine structure corresponding to the irradiation with the electromagnetic wave of the lower energy and/or the lower energy density on the surface of the base. Moreover, this is not obvious to a person skilled in the art.